

**POLYARYLENE SULFIDE RESIN COMPOSITION IMPROVED IN ADHESION TO EPOXY RESIN AND COMPOSITE EPOXY RESIN MOLDING**

**Patent number:** JP4304264  
**Publication date:** 1992-10-27  
**Inventor:** UOTA KATSUMI; TOKUSHIGE KAZUTOMO  
**Applicant:** POLYPLASTICS CO  
**Classification:**  
- **International:** C08K3/34; C08K7/02; C08L81/02  
- **european:**  
**Application number:** JP19910069747 19910402  
**Priority number(s):** JP19910069747 19910402

[Report a data error here](#)

**Abstract of JP4304264**

**PURPOSE:**To provide a polyarylene sulfide resin material which is used in the form of a molding as a substrate, a container or an external coating for holding an epoxy resin and has firm adhesion to especially an epoxy resin and excellent mechanical properties, heat resistance, chemical resistance and flame retardancy, and to provide a composite molding in which the material is firmly adhered to an epoxy resin by a simple process. **CONSTITUTION:**100 pts.wt. polyarylene sulfide resin is mixed with 2-100 pts.wt. fibrous filler, 2-150 pts.wt. talc of a mean particle diameter of 0.1-20µm, and optionally 0.5-30 pts.wt. thermoplastic polyolefin elastomer.

---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平4-304264

(43) 公開日 平成4年(1992)10月27日

(51) Int. Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 81/02	L R G	7167-4 J		
C 0 8 K 3/34				
7/02				
// (C 0 8 L 81/02				
23: 00		7107-4 J		

審査請求 未請求 請求項の数 5 (全 6 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平3-69747

(22) 出願日 平成3年(1991)4月2日

(71) 出願人 390006323

ポリプラスチックス株式会社

大阪府大阪市中央区安土町2丁目3番13号

(72) 発明者 魚田 克実

静岡県富士市宮島885-11

(72) 発明者 徳重 和友

静岡県富士市宮島885-11

(74) 代理人 弁理士 古谷 馨 (外3名)

(54) 【発明の名称】 エポキシ樹脂との接着性改良ポリアリーレンサルファイド樹脂組成物及びエポキシ樹脂との複合成形品

(57) 【要約】

【目的】 エポキシ樹脂を保持又は内蔵するための基板、容器、その他、外装となる成形品として特にエポキシ樹脂と強固な接着性を有し、しかも優れた機械的物性、耐熱性、耐薬品性、難燃性を有するポリアリーレンサルファイド系樹脂材料を提供し、簡易な方法で強固にエポキシ樹脂と接着した複合成形品を提供する。

【構成】 (A) ポリアリーレンサルファイド樹脂 100重量部に、(B) 繊維状充填剤 2~100 重量部、(C) 平均粒径0.1~20 $\mu$ m のタルク 2~150 重量部、場合により更に(D) ポリオレフィン系熱可塑性エラストマー0.5~30重量部を配合する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A) ポリアリーレンサルファイド樹脂 100重量部に、(B) 繊維状充填剤 2～100重量部、(C) 平均粒径 0.1～20 $\mu\text{m}$  のタルク 2～150重量部を配合してなるエポキシ樹脂との接着性改良ポリアリーレンサルファイド樹脂組成物。

【請求項2】 更に(D) ポリオレフィン系熱可塑性エラストマーを0.5～30重量部配合して成る請求項1記載のポリアリーレンサルファイド樹脂組成物。

【請求項3】 繊維状充填剤(B) がガラス繊維である請求項1又は2記載のポリアリーレンサルファイド樹脂組成物。

【請求項4】 (D) 成分のポリオレフィン系熱可塑性エラストマーが、エチレンと炭素数3以上の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体、 $\alpha$ -オレフィンと $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和酸又はその誘導体とからなるオレフィン系共重合体、又はこれらの共重合体にスチレン、アクリロニトリル、 $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸又はその誘導体の一種以上よりなる重合体又は共重合体が化学的に結合したグラフト共重合体、又はこれらの混合物である請求項2記載のポリアリーレンサルファイド樹脂組成物。

【請求項5】 請求項1～4の何れか1項記載のポリアリーレンサルファイド樹脂組成物を成形した成形品とエポキシ系樹脂体を接合してなる複合成品。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明はエポキシ樹脂との接着性に優れ、エポキシ樹脂又はエポキシ樹脂製品を密接に保持又は内装するのに好適なポリアリーレンサルファイド樹脂組成物、並びにかかる樹脂材料より成形したエポキシ樹脂を接着保持又は内装した複合成品に関する。

## 【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】 IC、トランジスタ、ダイオード、抵抗、コンデンサー、コイルおよびコネクタなどの種々の電子部品は、各端子間の電氣的絶縁、機械的強度の保持、温度や浮遊不純物などの外部環境からの内部保護がその性能維持のため必要不可欠である。そのためかかる電子部品等の機能部品は合成樹脂を用いて密封するいわゆる封止が一般に行われている。かかる封止用樹脂材料としては電気絶縁性、機械的保護効果、外部環境との保護、更には封止する機能部品との気密性等の見地から専らエポキシ樹脂が使用されている。然し乍らこの様なエポキシ樹脂体は更にこれを支持、固定するための基板や容器等の支持体に密接に内蔵又は固定する必要がある、かかるエポキシ樹脂体を保持又は内蔵するための基板やパッケージ材料としては、第一にエポキシ樹脂との接着性に優れ、しかも苛酷な使用環境に耐えうる耐熱性、難燃性、機械的物性等を備えた材料が要求されるが、かかる性能を十分に備えた樹脂材料は未だ得られていないのが実情であり、かかる

目的に適合したエポキシ接着性に優れ、しかもその支持又は外装保護体としての要件を備えた樹脂材料の開発が望まれている。例えば従来かかる目的で使用されるエポキシ樹脂体用パッケージ材料としてはポリエステル系樹脂等のエンジニアリング樹脂が用いられているが、これらの材料はその用途によっては機械的物性、耐熱性、難燃性、耐薬品性等の点で不十分であった。

【0003】 一方、ポリアリーレンサルファイド樹脂(PAS)は適当な強化剤又は充填剤を配合することにより優れた機械的物性を有し、又、耐熱性、耐薬品性、難燃性の点でも保護材料として好適であるが、この樹脂材料は一般にエポキシ系樹脂との接着性が劣り、この点でかかる用途に対する大きな支障となっていた。又この樹脂の接着性は成形品の接着面の機械的粗面化、プラズマ処理等の物理的処理、化学エッチング等の化学的処理等により多少改善されるが、かかる手段はコストの上昇をまねき、経済的に好ましくないのみならず、その接着性も必ずしも充分ではない。

【0004】 本発明は、かかる現状に鑑み、機能部品等を封入したエポキシ樹脂体を保持又は内蔵するための基板、又は容器、その他、外装となる成形品として優れた機械的物性、耐熱性、耐薬品性、難燃性を有し、しかも、特にエポキシ樹脂と強固な接着性を有するPAS系樹脂材料を提供し、簡易な方法で強固にエポキシ樹脂と接着した複合成品を提供することを目的とする。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】 本発明者等はかかる目的でポリアリーレンサルファイド樹脂のエポキシ樹脂との接着性(密着性)を改善するため鋭意検討した結果、ポリアリーレンサルファイド樹脂に、繊維状充填剤ならびに特定のタルクを配合し、さらに要すればポリオレフィン系熱可塑性エラストマーを添加することにより、エポキシ樹脂との接着性(密着性)が顕著に向上することを見出し本発明を完成するに至った。即ち本発明は(A) ポリアリーレンサルファイド樹脂 100重量部に、(B) 繊維状充填剤 2～100重量部、(C) 平均粒径 0.1～20 $\mu\text{m}$  のタルク 2～150重量部、場合により更に(D) ポリオレフィン系熱可塑性エラストマー0.5～30重量部を配合してなるエポキシ樹脂との接着性の改良された樹脂組成物であり、又かかる組成物で成形した成形品とエポキシ系樹脂体を接合した複合成品に関する。

【0006】 先づ本発明の組成物の構成成分について説明する。本発明のエポキシ接着性組成物における(A)成分としてのポリアリーレンサルファイド樹脂は、主たる繰返し単位が $-(\text{Ar}-\text{S})-$ (但しArはアリーレン基)で構成されたものである。アリーレン基(Ar)としては、例えば、p-フェニレン基、m-フェニレン基、o-フェニレン基、置換フェニレン基(但し置換基はアルキル基、好ましくは $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$ のアルキル基、又はフェニル基)、p,p'-ジフェニレンスルホン基、p,p'-ビフェ

3

ニレン基、 $p,p'$ -ジフェニレンエーテル基、 $p,p'$ -ジフェニレンカルボニル基、ナフタレン基などが使用できる。この場合、前記のアリーレン基から構成されるアリーレンサルファイド基の中で、同一の繰り返し単位を用いたポリマー、即ちホモポリマーを用いることができ、又、組成物の加工性という点から、異種繰り返し単位を含んだコポリマーが好ましい場合もある。

【0007】ホモポリマーとしては、アリーレン基として $p$ -フェニレン基を用いた、 $p$ -フェニレンサルファイド基を繰り返し単位とする実質上線状のものが特に好ましく用いられる。又、コポリマーとしては、前記のアリーレン基からなるアリーレンサルファイド基の中で、相異なる2種以上の組み合わせが使用できるが、中でも $p$ -フェニレンサルファイド基を主とし、 $m$ -フェニレンサルファイド基を含む組み合わせが特に好ましく用いられる。この中で $p$ -フェニレンサルファイド基を60モル%以上、より好ましくは70モル%以上含む実質上線状のものが、耐熱性、成形性、機械的特性等の物性上の点から適当である。この場合、成分の繰り返し単位がランダム状のものより、ブロック状に含まれているもの（例えば特開昭61-14228号公報に記載のもの）が、加工性が良く且つ、耐熱性、機械的物性も優れており、好ましく使用できる。本発明に使用する(A)成分としてのポリアリーレンサルファイド樹脂は、比較的低分子量の線状ポリマーを酸化架橋又は熱架橋により溶融粘度を上昇させ、成形加工性を改良したポリマーも使用できるが、2官能性モノマーから縮重合によって得られる実質的に線状構造の高分子量ポリマーを使用することもできる。本発明の目的からは後者の実質的に線状構造ポリマーのほうが物性上好ましい場合が多い。又、本発明のポリアリーレンサルファイド樹脂としては、前記のポリマーの他に、モノマーの一部分として3個以上の官能基を有するモノマーを混合使用して重合した架橋ポリアリーレンサルファイド樹脂、又はこれを、前記の線状ポリマーにブレンドした配合樹脂も用いることができ好適である。

【0008】本発明に使用する(A)PASの粘度は特に限定する必要はなく成形加工性を有するものであればよいが、中でも温度310℃、剪断速度1200/秒の条件下で測定した溶融粘度が $5 \times 10^4 \sim 1 \times 10^6$ ポイズ、特に好ましくは100~5000ポイズの範囲にある実質上線状のポリマーが適当である。50ポイズ未満では、流動性が良すぎて溶融加工が困難であり、仮に成形物が得られたとしても、機械的強度などが低く基板又は外装品として好ましくない。又、 $1 \times 10^6$ ポイズを越えるものは流動性が悪く溶融加工が困難である。

【0009】次に本発明の組成物を構成する(B)繊維状充填剤は、機械的強度、耐熱性等の性能を向上させるために有効であり、これにはガラス繊維、炭素繊維、アスベスト繊維、シリカ繊維、シリカ・アルミナ繊維、ジルコニア繊維、窒化硼素繊維、窒化硅素繊維、硼素繊維、

4

チタン酸カリ繊維などの無機質繊維状物質が挙げられる。なお、ポリアミド、フッ素樹脂、アクリル樹脂などの高融点有機質繊維状物質も使用することができる。最も代表的な繊維状充填剤はガラス繊維であり、中でも平均径2~20 $\mu\text{m}$ 、平均繊維長30~800 $\mu\text{m}$ のガラス繊維を含むものが好適である。繊維状充填剤(B)の配合量はPAS樹脂(A)100重量部に対し2~100重量部であり、好ましくは5~70重量部である。これが過少であると成形品の機械的強度が低下し、又、過大であると成形性を悪化させ、且つ歪、変形等を生じエポキシ樹脂との接着性にも問題を生じることがあり好ましくない。

【0010】次に本発明は(C)成分として平均粒径0.1~20 $\mu\text{m}$ のタルクを配合するところに特徴がある。本発明のポリアリーレンサルファイド樹脂組成物の構成成分として使用するタルクは一般に含水ケイ酸マグネシウム( $\text{SiO}_2$ : 58~64%,  $\text{MgO}$ : 28~32%,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ : 0.5~5%,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ : 0.3~5%)を主成分とするものであり、特に本発明のエポキシ樹脂との接着性を改善する目的からすると平均粒径が0.1~20 $\mu\text{m}$ 、好ましくは1~10 $\mu\text{m}$ の板状結晶であり、含水率が1%以下好ましくは0.5%以下、600℃強熱減量6%以下好ましくは4%以下のものである。多少不純物を有するものであってもよいが、精製したものの方が好ましい。(C)成分のタルクの配合量は、(A)PAS100重量部に対し2~150重量部であり、好ましくは3~100重量部である。(C)成分の配合量が過少であると本発明の目的とする、エポキシ樹脂との接着性の向上効果が得られず、又、過大であると成形加工性に問題を生じ、機械的物性の点からも好ましくない。又、(B)成分と(C)成分の総量が、(A)PAS100重量部に対し200重量部以下とすることが同様の理由により好ましい。

【0011】ところでPAS樹脂に繊維状充填剤を配合した強化樹脂組成物は一般に公知であり、又、これに更に、タルクも含め、炭酸カルシウム、硫酸カルシウム、マイカ、クレー、シリカ、石英粉末、ガラスビーズ、ガラスフレーク、各種金属酸化物等の粉粒状、平板状充填剤を配合することも一般に知られており、その変形の防止、耐熱性の向上、電気的性質の改善等に有効であるとされている。しかし本発明の如く、特定のタルクを繊維状充填剤と共に併用配合することによって、エポキシ樹脂との接着性が著しく改善されることは従来全く知られていない意外な効果であって、しかも類似の粉粒状又は平板状充填剤であるマイカ、炭酸カルシウム、ガラスビーズ、シリカ等にはこの効果が全く見られないことは極めて意外な現象である。本発明はかかる効果により、機能部品等をエポキシ系樹脂で封止する様な場合、その支持体としての要件であるエポキシ樹脂との接着性に優れ、しかも機械的物性、耐熱性、難燃性等これらのエポキシ樹脂体を支持する基板又は容器として、エポキシ樹脂と接合した複合成品とした場合の優れた特性を付与

することに成功したのである。

【0012】本発明に於て使用する(B)成分の繊維状充填剤及び(C)成分のタルクは、そのまま使用してもよいが、公知の表面処理剤例えば有機シラン系化合物、有機ボラン系化合物、エポキシ系化合物、有機チタネート系化合物、イソシアネート系化合物等のカップリング剤等で表面処理又収束処理して使用してもよく、又組成物の調製の際同時に添加してもよい。特にアミノアルコキシシラン、エポキシアルコキシシラン、ビニルアルコキシシラン、メルカプトアルコキシシラン等による表面処理、又は添加は機械的物性に対し有効である。

【0013】本発明のエポキシ樹脂接着性PAS樹脂組成物は、必ずしも必須の成分ではないが、上記(A)、(B)、(C)成分以外に更に(D)オレフィン系熱可塑性エラストマーを配合することがエポキシ樹脂との接着性を向上する上で好ましい。配合する熱可塑性エラストマーとして好ましい物質は以下の如き $\alpha$ -オレフィンを主体とする共重合体又はグラフト共重合体である。即ち、

a)エチレンと炭素数3以上の $\alpha$ -オレフィン(例えばプロピレン、ブテン-1、ヘキセン-1、4-メチルブテン-1、4-メチルペンテン-1等、特にプロピレン、ブテン-1)との共重合体

b)上記a)に、 $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸又はその誘導体(例えばアクリル酸、メタクリル酸、エタクリル酸、マレイン酸、フマル酸又はこれらのアルキルエステル、グリシジルエステル、無水物、イミド等)がグラフト重合した、グラフト共重合体

c) $\alpha$ -オレフィン(例えばエチレン、プロピレン、ブテン-1等)と $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸又はその誘導体(例えばアクリル酸、メタクリル酸、エタクリル酸、マレイン酸、フマル酸、又はこれらのアルキルエステル、グリシジルエステル、無水物等)との共重合体

d)上記c)の共重合体と、スチレン、アクリロニトリル等のビニル化合物又は $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸又はその誘導体の少なくとも一種よりなる重合体又は共重合体が化学的に結合した構造のグラフト共重合体

等があげられる。これらのa)~d)のオレフィン系(共)重合体は何れか単独でもよく、又二種以上が混合したものでよく、更には夫々を段階的に(共)重合又はグラフト重合させた、多相構造の重合体であってもよい。特に好ましい物質は、エチレンとプロピレン又はブテン-1の共重合体に無水マレイン酸又はマレインイミドをグラフト共重合したグラフト変性体、エチレンとアクリル酸アルキルエステル共重合体、及びこれに無水マレイン酸をグラフト共重合したグラフト変性体、 $\alpha$ -オレフィン特にエチレンとアクリル酸又はメタクリル酸グリシジルエステルとの共重合体、及びこの共重合体とスチレン、アクリロニトリル、アクリル酸アルキルエステル、メタクリル酸アルキルエステル等の少なくとも一種以上の重合又は共重合セグメントが化学的に結合しているグ

ラフト共重合体等が挙げられる。

【0014】尚、本発明のPAS組成物にはその目的を逸脱しない範囲で、上記成分以外に他の熱可塑性樹脂、例えばポリ塩化ビニル樹脂、ポリ塩化ビニリデン樹脂、ポリスチレン等のビニル系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリイミド系樹脂、他のポリオレフィン系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリエーテル系樹脂、ポリスルホン系樹脂、エポキシ樹脂、天然ゴム、合成ゴム等を補助的に少量配合することもできる。又、前述の成分以外に他の粉粒状又は板状充填剤を少量併用してもよく、更に難燃剤、酸化防止剤、紫外線防止剤等の各種安定剤、滑剤、離型剤、核剤、発泡剤、架橋剤、着色剤等の添加剤を必要に応じて加えても差し支えない。

【0015】本発明のPAS組成物の調製法は種々の公知の方法で熔融混練して調製することが出来る。例えば所要の成分を予めタンブラー又はヘンシェルミキサーの如き混合機で均一に混合し、これを一軸又は二軸の押出機に供給し、熔融混練してペレットとしてこれを成形に供するのが一般的である。又、ペレット化に際し、押出機で一旦熔融した樹脂成分に(B)成分等を加えてもよく、この方法によれば繊維状物の破損を防ぐ上で有効である。又、必要成分を混合後、直接成形機に供給し、熔融混練後そのまま成形してもよい。

【0016】本発明のPAS樹脂組成物の成形品は一般に行われる成形法によってエポキシ樹脂を支持又は内装するための基板又は容器その他の外装用成形品とすることが出来、射出成形、圧縮成形、真空成形等その目的に応じ何れの成形法を用いてもよいが、特に好ましいのは射出成形法である。

【0017】本発明のエポキシ樹脂を支持又は内装した複合成形品は、例えば本発明のPAS組成物により成形した基板又は容器に支持すべき機能部品等をセットし、これに後述の如き熱硬化性エポキシ樹脂を注入硬化させ、機能部品等をエポキシ樹脂にて封入すると同時にPAS組成物成形品に接着固定することによって調製される。又、予め機能部品等をエポキシ樹脂にて封入し硬化したエポキシ樹脂体を金型にセットし射出成形法によりインサート成形してその外装支持体をPAS樹脂組成物で成形して複合成形部品を形成してもよい。

【0018】本発明のPAS樹脂組成物成形品は機械的粗面化、プラズマ処理等の物理的処理、化学的エッチング等の特別の表面処理を施すことなく実用上充分なエポキシ樹脂との接着性が得られるが、特に強力な接着性を要するような場合には勿論かかる表面処理を併用してもよく、一層の効果を得ることができる。

【0019】本発明のPAS樹脂組成物成形品の接着の対象となるエポキシ樹脂は特に限定するものではなく通常機能部品の封止剤又は接着剤、塗料等として使用される硬化性のエポキシ系樹脂であればよく、一般にはビスフェノールA等の如き活性水素化合物とエピクロールヒ

ドリンとの反応、或は二重結合化合物の酸化等によって得られるエポキシ基を有する有機化合物に硬化剤又は触媒の存在下で室温下で放置又は加熱することによって反応し硬化する物質であり、目的に応じ各種の粘度のものをを用いることができる。又、本発明のPAS樹脂組成物成形品は上部の如きエポキシ系、塗料による塗装に対してもその接着性に効果を有する。

#### 【0020】

【発明の効果】上記説明及び実施例に示す如く本発明のPAS樹脂組成物よりなる成形品は、特にエポキシ系樹脂との接着性、密着性に優れ、高い接着強度を有するのみならず低温と高温の繰返しによるサーマルショックに対しても優れた剥離抵抗を有し、しかも機械的物性、耐熱性、難燃性、耐薬品性を有し、エポキシ樹脂と接着した複合成形品は苛酷な条件に耐え得る性能を有し、かかる条件で使用される機能部品を封止したエポキシ樹脂を支持又は内装する基板又は容器等の支持体として好適であり、又、エポキシ系樹脂塗料による塗装品としても優れている。

#### 【0021】

【実施例】以下、実施例により本発明を更に具体的に説明するが本発明はこれに限定されるものではない。

#### 【0022】実施例1～5および比較例1～9

(A) ポリフェニレンサルファイド樹脂(PPS)(呉羽化学工業(株)製フォートロンKPS)に対し、(B) ガラス繊維及び(C) タルク(平均粒径約4 $\mu$ m及び約7 $\sim$ 10 $\mu$ m)を表1に示す量で加え、ヘンシェルミキサーで5分間混合し、次いでこれをシリンダー温度310 $^{\circ}$ Cの2軸押出機に供給し、熔融混練して、ポリフェニレンサルファイド樹脂組成物のペレットをつくった。次いでこのペレットより射出成形機でシリンダー温度320 $^{\circ}$ C、金型温度150 $^{\circ}$ Cで各種試験片を成形し、下記の各種試験を行った。尚、比較のため(B) ガラス繊維の存在しない場合、(C) タルクの存在しない場合、タルクの粒径が本発明の範囲外の場合、及びタルクの代りに他の一般的粉粒状充填剤(C)'を使用した場合についても同様に比較試験した結果も併せて表1に示す。

【0023】引張試験；ASTM D-638に準じて引張強度及び引張伸度の測定を行った。

エポキシ樹脂との接着強度；上記のASTM試験片をほぼ中

央で切断しトリクロロエタンで洗浄後、エポキシ接着剤(日本チバガイギー(株)製IN1244)を所定の面積(13mm $\times$ 7mm)に塗布して接着し、120 $^{\circ}$ Cで1時間硬化させた後、23 $^{\circ}$ Cで1日放置した後、引張試験を行い、引張剪断接着強度の測定を行った。

ヒートサイクルによる剥離試験；射出成形機で箱型成形品(外寸20 $\times$ 40 $\times$ 80mm、肉厚2mm)を成形し、得られた成形品にビスフェノールA型エポキシ樹脂(アミン系硬化剤を含む)を注入し、まず60 $^{\circ}$ Cで30分間、次いで85 $^{\circ}$ Cで3時間の硬化条件で硬化させた。その後、常温にて1時間放置し、最後に150 $^{\circ}$ Cで3時間の熱処理を行った。次にこのエポキシ樹脂を内装、接着した箱を、-40 $^{\circ}$ Cで1時間、次に140 $^{\circ}$ Cで1時間のヒートサイクルにかけ、10サイクルごとに取り出して、PAS樹脂製の箱の側面を観察し、エポキシ樹脂との接触界面の剥離状態を目視により調べた。最初に剥離の生じたサイクル数を以てヒートショックに対する耐抗性とした(接着界面に剥離を生じたときは色調の変化を生じるため確認できる)。

#### 【0024】実施例6～13、比較例10～14

前記実施例と同様の(A) PPS、(B) ガラス繊維及び(C) タルク(平均粒径約10 $\mu$ m)と(D) 各種ポリオレフィン系エラストマーを表2に示す量で配合し、前記実施例と同様にして評価した。結果を表2に示す。尚、本例で使用したポリオレフィン系エラストマーは以下の如き物質である。

#### エラストマー1

EGMA(エチレン/グリシジルメタクリレート 85/15共重合体)

#### エラストマー2

EGMA-ポリアクリロニトリル・スチレン(70-30)グラフト共重合体

#### エラストマー3

EGMA-ポリメタクリル酸メチル(70-30)グラフト共重合体

#### エラストマー4

エチレン/エチルアクリレート共重合体に無水マレイン酸をグラフトしたグラフト共重合体(グラフト率約3.0%)

#### 【0025】

【表1】

表 1

		単 位	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	比較例 7	比較例 8	比較例 9
組 成	(A) PPS	重量部	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	(B) ガラス繊維	"	20	20	20	20	50	20	—	20	20	20	20	20	20	20
	(C) タルク	"	5	20	20*	80	20	—	20	—	—	—	—	20**	1	200
	(C)' 炭酸カルシウム	"	—	—	—	—	—	—	—	20	—	—	—	—	—	—
	(C)' マイカ	"	—	—	—	—	—	—	—	—	20	—	—	—	—	—
	(C)' ガラスビーズ	"	—	—	—	—	—	—	—	—	—	20	—	—	—	—
	(C)' シリカ粉末	"	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	20	—	—	—
評 価	引張強度	kg/cm <sup>2</sup>	1210	1270	1250	1370	1840	1200	1010	1230	1310	1240	1210	1240	1210	870
	引張伸び	%	1.3	1.1	1.1	0.8	0.9	1.3	1.3	1.1	1.2	1.0	1.0	1.1	1.3	0.4
	エポキシ接着強度	kg/cm <sup>2</sup>	102	118	121	139	118	62	103	73	78	74	77	92	65	103
	ヒートサイクル テスト	サイクル	30	40	40	40	40	10	20	10	10	10	10	20	10	10

\* 使用タルクの平均粒径約4 $\mu$ m\*\* 使用タルクの平均粒径約30 $\mu$ m(他の例は約7~10 $\mu$ m)

【0026】

【表2】

表 2

		単 位	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10	実施例 11	実施例 12	実施例 13	比較例 10	比較例 11	比較例 12	比較例 13	比較例 14
組 成	(A) PPS	重量部	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	(B) ガラス繊維	"	20	20	20	20	20	20	50	20	20	—	20	20	20
	(C) タルク	"	20	20	20	20	20	20	20	80	—	20	—	—	—
	(C)' 炭酸カルシウム	"	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	20	—	20
	(C)' マイカ	"	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	20	—
	(D) エラストマー1	"	10	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	10
	(D) エラストマー2	"	—	5	10	15	—	—	10	10	10	10	10	10	—
	(D) エラストマー3	"	—	—	—	—	10	—	—	—	—	—	—	—	—
	(D) エラストマー4	"	—	—	—	—	—	10	—	—	—	—	—	—	—
評 価	引張強度	kg/cm <sup>2</sup>	940	1070	980	890	980	1030	1540	1370	1120	720	950	970	940
	引張伸び	%	2.5	2.5	2.8	3.1	2.7	2.6	1.7	1.9	2.2	2.7	2.5	2.4	2.3
	エポキシ接着強度	kg/cm <sup>2</sup>	110	120	122	124	118	114	123	141	68	104	79	82	76
	ヒートサイクルテスト	秒回	90	90	100	100	90	100	70	70	10	50	40	50	40

フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>5</sup>

C 08 L 51:06)

識別記号

庁内整理番号

7142-4 J

F I

技術表示箇所